

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関
国際事務局



(43)国際公開日
2005年4月14日 (14.04.2005)

PCT

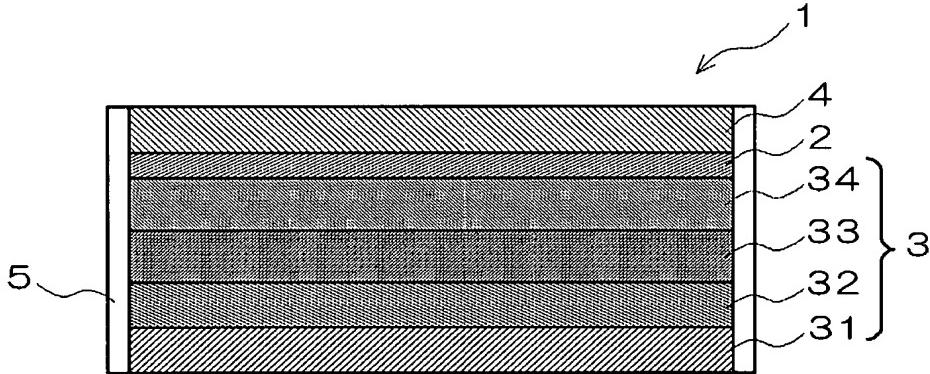
(10)国際公開番号
WO 2005/034583 A1

- (51)国際特許分類7:
H05B 33/04, 33/14
- (21)国際出願番号:
PCT/JP2004/014519
- (22)国際出願日:
2004年10月1日 (01.10.2004)
- (25)国際出願の言語:
日本語
- (26)国際公開の言語:
日本語
- (30)優先権データ:
特願2003-346262 2003年10月3日 (03.10.2003) JP
- (71)出願人(米国を除く全ての指定国について): JSR
株式会社 (JSR CORPORATION) [JP/JP]; 〒1048410 東
京都中央区築地五丁目6番10号 Tokyo (JP).
- (72)発明者; および
- (75)発明者/出願人(米国についてのみ): 鈴木 昌則
(SUZUKI, Masanori) [JP/JP]; 〒1048410 東京都中央
区築地五丁目6番10号 JSR株式会社内 Tokyo
- (JP). 川田 隆 (KAWATA, Takashi) [JP/JP]; 〒1048410
東京都中央区築地五丁目6番10号 JSR株式会社内 Tokyo (JP). 溝内 博行 (MIZOUCHI, Hiroyuki)
[JP/JP]; 〒1048410 東京都中央区築地五丁目6番
10号 JSR株式会社内 Tokyo (JP). 森川 明彦
(MORIKAWA, Akihiko) [JP/JP]; 〒1048410 東京都中
央区築地五丁目6番10号 JSR株式会社内 Tokyo
(JP).
- (74)代理人: 小島 清路 (KOJIMA, Seiji); 〒4560031 愛知
県名古屋市熱田区神宮三丁目7番26号 热田大同
生命ビル2階 Aichi (JP).
- (81)指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が
可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR,
BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,
ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,
LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA,
NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE,

/統葉有

(54) Title: TRANSPARENT SEALING MATERIAL FOR ORGANIC EL DEVICE

(54)発明の名称: 有機EL素子用透明封止材



(57) Abstract: Disclosed is a transparent sealing material for organic EL devices which is excellent in flexibility and capable of sufficiently sealing an organic EL device. Further, when this transparent sealing material is used in an organic EL display, it enables to suppress generation of dark spots and to enhance visibility of images. A transparent sealing material (2) for organic EL devices is composed of a flexible polymer composition and arranged between the light-emitting surface of a light-emitting device (3) and a sealing member (4) in an electroluminescent display panel (1) which comprises the light-emitting device (3) sequentially comprising a substrate (31), a positive electrode layer (32), a light-emitting layer (33) and a negative electrode layer (34) and the sealing member (4) arranged on the light-emitting surface side of the light-emitting device (3).

(57)要約: 本発明は、柔軟性に優れ、有機EL素子を十分に封止することができ、有機ELディスプレイとした場合、ダークスポットの発生を抑制し、画像の視認性を高くすることができる有機EL素子用透明封止材を提供する。本発明の有機EL素子用透明封止材2は、柔軟性重合体組成物から形成され、基板31と、陽極層32と、発光層33と、陰極層34と、を順次含む発光素子3、及び、この発光素子3の発光面側に配設される封止部材4を備えるエレクトロルミネッセンスディスプレイパネル1の、発光素子3の発光面と封止部材4との間に配設される。

WO 2005/034583 A1



SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US,
UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD,
SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,
KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG,
CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE,
IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF,
BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN,
TD, TG).

添付公開書類:

- 國際調査報告書
- 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

有機EL素子用透明封止材

技術分野

[0001] 本発明は、有機EL素子用透明封止材に関する。更に詳しくは、エレクトロルミネッセンスディスプレイパネル(以下、単に「ELディスプレイパネル」という。)を構成する発光素子の発光面側の空隙を充填するために用いられる有機EL素子用透明封止材に関する。本発明の有機EL素子用透明封止材は、携帯電話、携帯情報端末、デスクトップ型コンピュータ、ノート型コンピュータ、テレビジョン、車載用情報機器、時計、その他各種表示装置等用のELディスプレイパネル等に好適に用いることができる。

背景技術

[0002] EL素子は、自己発光するため、これを備える表示装置は視認性が高い。このような性質を利用し、無機EL素子に比べて印加電圧を低下させることのできる有機EL素子を備えた高性能の表示装置、即ち、有機ELディスプレイが検討されている。有機EL素子は、ガラス等からなる基板の上に陽極層、発光層及び陰極層が順次形成された構成が基本である。性能を向上させるために各層の間に機能層を設ける場合もある。

上記のような構成の有機EL素子は、陽極層と陰極層の間に通電することによって発光させることができる。しかし、素子の周囲に水分、不純物等が存在すると、素子を構成する材料が侵され、劣化を招くこととなる。劣化した有機EL素子を備える表示装置を用いると、発光欠陥、即ち、ダーススポットが発生し、視認性の悪化につながることとなる。

[0003] また、有機EL素子を備える表示装置は、通常、有機EL素子を覆い、密閉するために、ガラス等からなる透明基板(封止缶の場合もある。)等が備えられる。上記問題点を解決する方法として、有機EL素子と、透明基板との間に生じる空間に脱水剤を配設する方法、紫外線硬化樹脂からなる透明封止材を用いる方法、吸着剤を含有した不活性液体を充填する方法(特許文献1参照)等が開示されている。しかし、いずれ

もダークスポットの発生の抑制は不十分である。また、紫外線硬化樹脂を用いて得られる硬質な透明封止材を用いると、表示装置の製造段階において、透明基板あるいは封止缶の固定が容易でなく、また、十分に固定されず、素子の封止が不十分となる場合がある。

[0004] 特許文献1:特開平9-35868号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、柔軟性に優れ、有機EL素子を十分に封止することができ、有機ELディスプレイとした場合、ダークスポットの発生を抑制し、画像の視認性を高くすることができる有機EL素子用透明封止材を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明は以下に示される。

[1] 基板と、陽極層と、発光層と、陰極層と、を順次含む発光素子及び該発光素子の発光面側に配設される封止部材を備えるエレクトロルミネッセンスディスプレイパネルに用いられる有機EL素子用透明封止材であって、柔軟性重合体組成物から形成され、且つ、上記発光素子の発光面と上記封止部材との間に配設されることを特徴とする有機EL素子用透明封止材。

[2] 本有機EL素子用透明封止材を厚さ0.5mmとした場合、その全光線透過率は90%以上である上記[1]記載の有機EL素子用透明封止材。

[3] 上記柔軟性重合体組成物は、エラストマー組成物である上記[1]記載の有機EL素子用透明封止材。

[4] 上記柔軟性重合体組成物は、ジエン系重合体、オレフィン系重合体、アクリル系重合体、ウレタン系重合体、ポリアミド系重合体、ポリエステル系重合体、塩化ビニル系重合体、フッ素系重合体及びシリコーン系重合体から選ばれる少なくとも1種の重合体を含む上記[1]記載の有機EL素子用透明封止材。

[5] 上記ジエン系重合体は、ステレン・ブタジエン共重合体及びその水素化物、ステレン・イソプレン共重合体及びその水素化物、ブタジエンブロック共重合体及びその水素化物、ステレン・ブタジエン・ステレンブロック共重合体及びその水素化物、並

びに、スチレン・イソプレン・スチレンブロック共重合体及びその水素化物から選ばれる少なくとも1種である上記[4]記載の有機EL素子用透明封止材。

[6]上記ジエン系重合体は、ビニル結合含量が25%未満であるブタジエン重合体ブロック(I)と、共役ジエン単位(a1)及び他の単量体単位(a2)の質量割合[(a1)/(a2)]が(100ー50)/(0ー50)であり、ビニル結合含量が25ー95%である重合体ブロック(II)とを、それぞれ分子中に少なくとも1つ有する共役ジエン系ブロック重合体が水素添加されてなる共役ジエン系ブロック重合体の水素化物である上記[4]記載の有機EL素子用透明封止材。

[7]上記ジエン系重合体は、共役ジエン単位(b1)及び芳香族ビニル化合物(b2)の質量割合[(b1)/(b2)]が(99ー50)/(1ー50)であり、ビニル結合含量が65ー95%である重合体ブロックを分子中に少なくとも1つ有するジエン系重合体が水素添加されてなるジエン系重合体の水素化物である上記[4]記載の有機EL素子用透明封止材。

[8]上記オレフィン系重合体は、エチレン・ α -オレフィン共重合体、及び、エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体から選ばれる少なくとも1種である上記[4]記載の有機EL素子用透明封止材。

[9]上記エチレン・ α -オレフィン共重合体、及び、上記エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体は、カルボキシル基、ヒドロキシル基、エポキシ基、アミノ基、アルコキシシリル基、スルホン酸基及びニトリル基から選ばれる官能基を有する上記[8]記載の有機EL素子用透明封止材。

[10]更に金属イオン及び／又は金属化合物を含む上記[8]記載の有機EL素子用透明封止材。

[11]上記柔軟性重合体組成物は、液状物質を含む上記[1]記載の有機EL素子用透明封止材。

[12]上記液状物質の40°Cにおける動粘度が800mm²/s以下である上記[11]記載の有機EL素子用透明封止材。

[13]上記液状物質の含有量は、上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体の合計100質量部に対して、50ー5000質量部である上記[11]記載の有機EL素子

用透明封止材。

[14]本有機EL素子用透明封止材は、最薄部の厚さが0.1～1000μmの薄肉体である上記[1]記載の有機EL素子用透明封止材。

発明の効果

[0007] 本発明の有機EL素子用透明封止材は、柔軟性重合体組成物から形成されている。本発明の有機EL素子用透明封止材は、柔軟性に優れ、発光素子を劣化させることなく十分に封止することができる。その結果、ダークスポットの発生を抑制することができ、画像の視認性が安定する。

本発明の有機EL素子用透明封止材は透明性にも優れるため、ELディスプレイパネルを構成する封止部材等の透明部材と密着した場合にも、その透明性が低下することない。その結果、画像の視認性が安定する。

上記柔軟性重合体組成物がエラストマー組成物である場合には、所望の形状の成形体とした場合にも十分な柔軟性を有する。その結果、ELディスプレイパネル内部の空間を隙間なく埋めることができる。

また、上記柔軟性重合体組成物に、ジエン系重合体、オレフィン系重合体、アクリル系重合体、ウレタン系重合体、ポリアミド系重合体、ポリエステル系重合体、塩化ビニル系重合体、フッ素系重合体及びシリコーン系重合体から選ばれる重合体を含む場合、更には特定のジエン系重合体又はオレフィン系重合体を含む場合には、特に透明性の高い有機EL素子用透明封止材とすることができる。更に、上記柔軟性重合体組成物に、動粘度が所定の範囲にある液状物質を含む場合には、透明性を低下させず、より柔軟性に優れた成形体とすることができる。

本発明の有機EL素子用透明封止材は、薄肉体とすることもできる。このような形態であっても、容易に破断する、容易に傷が付くということがない。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]ELディスプレイパネルを示す説明断面図である。

[図2]他のELディスプレイパネルを示す説明断面図である。

[図3]発光素子を示す説明断面図である。

符号の説明

[0009] 1;ELディスプレイパネル、2;有機EL素子用透明封止材、3;発光素子、31;基板、32;陽極層、33;発光層、34;陰極層、4;封止部材、5;筐体。

発明を実施するための最良の形態

[0010] 以下、本発明を詳しく説明する。

本発明の有機EL素子用透明封止材は、基板と、陽極層と、発光層と、陰極層と、を順次含む発光素子(有機EL素子)及び該発光素子の発光面側に配設される封止部材を備えるELディスプレイパネルに用いられ、柔軟性重合体組成物から形成され、且つ、上記発光素子の発光面と上記封止部材との間に配設されるものである。

[0011] 本発明の有機EL素子用透明封止材は、以下に説明する柔軟性重合体組成物から形成される。尚、本発明において、「柔軟性重合体組成物」は、以下に説明する重合体と、他の成分とを含むものであってもよいし、重合体のみであってもよい。従つて、本発明の有機EL素子用透明封止材は、以下に説明する重合体と、他の成分とを含む柔軟性重合体組成物から形成されるものであってもよいし、重合体のみで構成される柔軟性重合体組成物から形成されるものであってもよい。

上記柔軟性重合体組成物は、柔軟性を有し、透明な成形体を与える重合体を含有することが好ましい。含有される重合体は樹脂であってもよいし、エラストマー(ゴムを含む)であってもよい。更には、樹脂及びエラストマーを組み合わせてもよい。本発明においては、上記柔軟性重合体組成物は、エラストマー組成物であることが好ましい。含有される重合体としては、オレフィン系重合体、ジエン系重合体、アクリル系重合体、ウレタン系重合体、ポリアミド系重合体、ポリエステル系重合体、塩化ビニル系重合体、フッ素系重合体、シリコーン系重合体等が挙げられる。これらは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0012] 上記ジエン系重合体としては、共役ジエンを用いてなる重合体が好ましい。例えば、上記ジエン系重合体は、共役ジエンの単独重合体、共重合体であってもよいし、共役ジエンと他の单量体との共重合体であってもよい。また、上記ジエン系重合体は、単独重合体と共重合体とを組み合わせて用いてもよい。上記共役ジエンとしては、1, 3-ブタジエン、イソプレン、2, 3-ジメチル-1, 3-ブタジエン、1, 3-ペントジエン、2-メチル-1, 3-ペントジエン、1, 3-ヘキサジエン、4, 5-ジェチル-1, 3-オクタジ

エン、クロロブレン等が挙げられる。これらのうち、1, 3-ブタジエン、イソブレン及び1, 3-ペンタジエンが好ましく、特に1, 3-ブタジエン及びイソブレンが好ましい。尚、上記例示した化合物は、1種単独であるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

また、共重合体とする場合の他の单量体としては、スチレン、*t*-ブチルスチレン、 α -メチルスチレン、 α -クロロスチレン、*p*-メチルスチレン、ジビニルベンゼン、N, N-ジエチル-p-アミノスチレン等の芳香族ビニル化合物；(メタ)アクリロニトリル等のシアノ化ビニル化合物；ビニルピリジン等の窒素原子含有ビニル化合物等が挙げられる。これらのうち、スチレン及び α -メチルスチレンが好ましい。尚、上記例示した化合物は、1種単独であるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。上記ジエン系重合体が共役ジエンと他の单量体との共重合体である場合、共役ジエン単位は、ランダム、テーパー(分子鎖に沿って单量体が増加又は減少するもの)及び一部ブロックから選ばれる分布であつてよい。

- [0013] 上記ジエン系重合体としては、ポリブタジエン、ポリイソブレン、スチレン・ブタジエン共重合体、スチレン・イソブレン共重合体、イソブチレン・イソブレン重合体、アクリロニトリル・ブタジエン共重合体等が挙げられる。その他、スチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体、スチレン・イソブレン・スチレンブロック共重合体等の共役ジエン系ブロック共重合体であつてもよい。この共役ジエン系ブロック共重合体は、共役ジエンの共重合体であつてもよいし、上記のように共役ジエンと、芳香族ビニル化合物等の1種以上の他の单量体との共重合体であつてもよい。従つて、このブロック共重合体のブロック構造としては、 $(A-B)_m A$ 、 $(B-A)_m B$ 、 $(A-B-A)_m$ 、 $(B-A-B)_m$ 等が挙げられる。更に、このブロック共重合体のブロック構造としては、 $(A-B)_m X$ 、 $(B-A)_m X$ 、 $(A-B-A)_m X$ 、 $(B-A-B)_m X$ 等のように、カップリング剤残基Xを介して重合体分子鎖が延長又は分岐されたものでもよい。各一般式において、「A」は共役ジエン単位を主体とするブロック、「B」は他の共役ジエン単位又は他の单量体単位を主体とするブロック、*m*は1以上の整数である。尚、本発明に関わるジエン系重合体は、上記重合体の水素化物(水素添加重合体)であつてもよい。水素化物を用いる場合のその水素添加率は、好ましくは80%以上、より好ましくは85%以上、特に好ましく

は90%以上である。水素添加率が高いほど、成形体とした場合の耐光性、形状保持性及び力学的性質を向上させることができる。

- [0014] 上記ジエン系重合体としては、共役ジエン系ブロック重合体の水素化物又は共役ジエンと芳香族ビニル化合物とかなるジエン系重合体の水素化物を好ましく用いることができる。
- [0015] 上記共役ジエン系ブロック重合体としては、ビニル結合含量が25%未満であるブタジエン重合体ブロック(I)と、共役ジエン単位(a1)及び他の単量体単位(a2)の質量割合[(a1)/(a2)]が(100~50)/(0~50)であり、ビニル結合含量が25~95%である重合体ブロック(II)とを、それぞれ分子中に少なくとも1つ有するジエン系ブロック重合体(以下、「重合体(P)」といふ。)が好ましい。
- [0016] 上記ブタジエン重合体ブロック(I)において、ビニル結合(1, 2-ビニル結合)の含量は、好ましくは25%未満、より好ましくは5~20%、更に好ましくは7~19%である。従って、上記ブタジエン重合体ブロック(I)は、水素添加によりエチレン・ブテン共重合体に類似した構造を示す結晶性のブロックとなる。ビニル結合含量を上記範囲とすることにより、成形体の力学的性質及び形状保持性を向上させることができる。
- [0017] また、上記重合体ブロック(II)は、共役ジエン単位のみからなるブロックであってもよいし、共役ジエン単位(a1)と他の単量体単位(a2)とかなるブロックであってもよい。共役ジエン単位(a1)及び他の単量体単位(a2)の質量割合[(a1)/(a2)]は、好ましくは(100~50)/(0~50)であり、より好ましくは(100~70)/(0~30)、更に好ましくは(100~90)/(0~10)である。このような範囲とすることにより、粘弾性に優れた成形体を得ることができる。
- 尚、上記重合体ブロック(II)において、ビニル結合(1, 2-ビニル結合及び3, 4-ビニル結合)の含量は、好ましくは25~95%であり、より好ましくは25~90%、更に好ましくは30~85%である。
- [0018] 従って、上記重合体(P)としては、ブタジエン重合体ブロック(I)を「A¹」、重合体ブロック(II)を「B¹」とした場合、(A¹-B¹)_{m1}、(A¹-B¹)_{m2}-A¹、(B¹-A¹)_{m3}-B¹等で表されるものを用いることができる。各一般式において、m1~m3は1以上の整数を示す。

また、上記重合体(P)は、トリプロック以上のプロックを有する共重合体であると、水素化物とした場合に、更に形状保持性及び力学的性質により優れる成形体を得ることができる。従って、上記一般式において、 m_1 は、2以上の整数であることが好ましい。

- [0019] 尚、上記重合体(P)は、上記ブタジエン重合体プロック(I)及び上記重合体プロック(II)をそれぞれ分子中に少なくとも1つ有していればよく、これら以外に、他のプロック、例えば、共役ジエン単位以外の他の単量体単位からなるプロックを有する重合体であってもよい。
- [0020] 上記重合体(P)を構成する上記ブタジエン重合体プロック(I)及び上記重合体プロック(II)の含有割合[(I)/(II)]は、好ましくは(5~60)/(95~40)、より好ましくは(7~55)/(93~45)、更に好ましくは(7~50)/(93~50)である。上記各プロックの含有割合を上記範囲とすることにより、水素化物とした場合に、形状保持性及び力学的性質に特に優れた成形体を得ることができる。
- [0021] 上記共役ジエンと芳香族ビニル化合物とからなるジエン系重合体(以下、「ジエン系重合体(Q)」といふ。)としては、共役ジエン単位(b1)及び芳香族ビニル化合物(b2)の質量割合[(b1)/(b2)]が(99~50)/(1~50)であり、ビニル結合含量が65~95%である重合体プロックを、分子中に少なくとも1つ有するジエン系重合体が好ましい。このようなジエン系重合体を用いると、粘弹性に優れた成形体を得ることができる。
- [0022] また、上記ジエン系重合体(Q)は、芳香族ビニル化合物からなる重合体プロックを少なくとも2つ有する共重合体であると、水素化物とした場合に、形状保持性及び力学的性質により優れる成形体を得ることができる。
- [0023] 上記ジエン系重合体(Q)において、芳香族ビニル化合物からなる重合体プロック(I)と、共役ジエンと芳香族ビニル化合物とからなる重合体プロック(II)との含有割合[(I)/(II)]は、好ましくは(1~40)/(99~60)、より好ましくは(3~30)/(97~70)、更に好ましくは(5~20)/(95~80)である。上記各プロックの含有割合を上記範囲とすることにより、水素化物とした場合に、形状保持性及び力学的性質に特に優れた成形体を得ることができる。従って、上記ジエン系重合体(Q)としては、重合体プロ

ック(I)を「A1」、重合体ブロック(II)を「B1」とした場合、 B^1 、 $(A^1-B^1)_{m_1}$ 、 $(A^1-B^1)_{m_2}$
 $-A^1$ 、 $(B^1-A^1)_{m_3}-B^1$ 等で表されるものを用いることができる。各一般式において、 m_1
 $-m_3$ は1以上の整数を示す。

- [0024] 尚、上記重合体(P)及び上記ジエン系重合体(Q)においても、 $(A^1-B^1)_nX$ 、 $(B^1-A^1)_nX$ 、 $(A^1-B^1-A^1)_nX$ 、 $(B^1-A^1-B^1)_nX$ 等のように、カップリング剤残基Xを介して重合体分子鎖が延長又は分岐されたものでもよい。各一般式において、nは2以上の整数を示す。また、上記各一般式において、nが3以上のとき、水素化物とした場合に、形状保持性、ホットメルト粘・接着性に優れた成形体を得ることができる。上記カップリング剤としては、1, 2-ジプロモエタン、メチルジクロロシラン、トリクロロシラン、メチルトリクロロシラン、テトラクロロシラン、テトラメトキシシラン、ジビニルベンゼン、アジピン酸ジエチル、アジピン酸ジオクチル、ベンゼン-1, 2, 4-トリイソシアート、トリレンジイソシアート、エポキシ化1, 2-ポリブタジエン、エポキシ化アマニ油、テトラクロロゲルマニウム、テトラクロロスズ、ブチルトリクロロスズ、ブチルトリクロロシラン、ジメチルクロロシラン、1, 4-クロロメチルベンゼン、ビス(トリクロロシリル)エタン等が挙げられる。
- [0025] 上記重合体(P)及び上記ジエン系重合体(Q)の水素化(水素添加)は、ブロック中のオレフィン性不飽和結合に対して行う。水素添加率を、好ましくは80%以上、より好ましくは85%以上、特に好ましくは90%以上と高くすることで、得られる水素化物により成形体とした場合の耐光性、形状保持性及び力学的性質を向上させることができる。尚、上記重合体(P)及び上記ジエン系重合体(Q)の水素化は、特開平2-133406号公報、特開平3-128957号公報、特開平5-170844号公報等に開示される方法等によって行うことができる。
- [0026] また、上記イソブチレン・イソプレン共重合体は、一般に「ブチルゴム」として用いられるものであるが、イソブチレン及びイソプレンと、更に他の単量体、例えば極性基を有する化合物(以下、「極性基含有化合物」ともいう。)との共重合体であってもよい。更にはこの極性基含有化合物等による部分架橋共重合体等であってもよい。
- [0027] 上記極性基含有化合物としては、ヒドロキシル基、エポキシ基、アミノ基、カルボキシル基、酸無水物基、アルコキシシリル基、ニトリル基等から選ばれる少なくとも1種を

有する化合物を用いることができる。また、上記部分架橋共重合体は、通常、これらの極性基含有化合物に多官能性不飽和結合を有する化合物を共重合することにより得られる。この化合物としては、多価アリル化合物、多価(メタ)アクリレート化合物、ジビニル化合物、ビスマレイミド化合物、ジオキシム化合物等が挙げられる。

- [0028] 上記ブチルゴムとしては、イソブチレン・イソブレン共重合体等がハロゲン化された塩素化イソブチレン・イソブレン共重合体、臭素化イソブチレン・イソブレン共重合体等であってもよい。
- [0029] 上記オレフィン系重合体としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン・ α -オレフィン共重合体、エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体等が挙げられる。但し、上記エチレン・ α -オレフィン共重合体及びエチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体における α -オレフィンは、エチレンを除く α -オレフィンであるものとする。この α -オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、3-メチル-1-ブテン、1-ヘキセン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン、1-ウンデセン等が挙げられ、炭素数が3-12である α -オレフィンが好ましく、特に、プロピレン及び1-ブテンが好ましい。尚、上記例示した α -オレフィンは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

上記エチレン・ α -オレフィン共重合体としては、エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・1-ブテン共重合体、エチレン・1-ペンテン共重合体、エチレン・3-メチル-1-ブテン共重合体、エチレン・1-ヘキセン共重合体、エチレン・3-メチル-1-ペンテン共重合体、エチレン・4-メチル-1-ペンテン共重合体、エチレン・3-エチル-1-ペンテン共重合体、エチレン・1-オクテン共重合体、エチレン・1-デセン共重合体、エチレン・1-ウンデセン共重合体等が挙げられる。これらのうち、エチレン・プロピレン共重合体及びエチレン・1-ブテン共重合体が好ましい。尚、上記例示したエチレン・ α -オレフィン共重合体は、1種単独であるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

- [0030] また、エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体とする場合の上記非共役ジエンとしては、1, 4-ペンタジエン、1, 4-ヘキサジエン、1, 5-ヘキサジエン、1, 7-

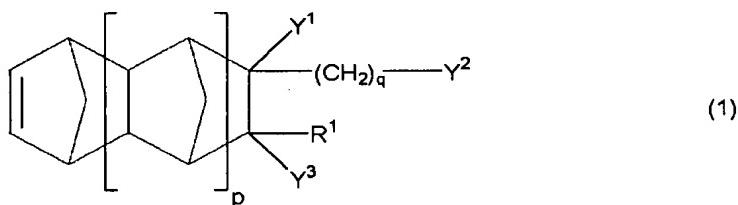
オクタジエン、1, 9-デカジエン、3, 6-ジメチル-1, 7-オクタジエン、4, 5-ジメチル-1, 7-オクタジエン、5-メチル-1, 8-ノナジエン、ジシクロペントジエン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-ビニル-2-ノルボルネン、2, 5-ノルボルナジエン等が挙げられる。これらは、1種単独あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

上記エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体としては、エチレン・プロピレン・ジシクロペントジエン共重合体、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合体、エチレン・1-ブテン・ジシクロペントジエン共重合体、エチレン・1-ブテン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合体等が挙げられる。これらは、1種単独あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0031] 尚、上記エチレン・ α -オレフィン共重合体及び上記エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体は、各重合体中に、他の单量体(a)からなる单量体単位を含有する重合体であってもよい。他の单量体(a)としては、カルボキシル基、ヒドロキシル基、エポキシ基、アミノ基、アルコキシシリル基、スルホン酸基、ニトリル基等の官能基を有する不飽和化合物が好ましい。このような不飽和化合物は、1種単独あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。また、上記不飽和化合物の使用量は、全单量体に対して、好ましくは0.01~10質量%、より好ましくは0.1~5質量%である。

[0032] カルボキシル基を有する不飽和化合物としては、無水マレイン酸、(メタ)アクリル酸、下記一般式(1)で表される環式化合物等を用いることができる。

[化1]



(上記一般式(1)において、R¹は、水素原子又は炭素数1~10の炭化水素基であり、Y¹、Y²及びY³は、それぞれ独立して、水素原子、炭素数1~10の炭化水素基又

は-COOHであり、Y¹、Y²及びY³のうち少なくとも1つは-COOHであり、また、Y¹、Y²及びY³のうち2つ以上が-COOHである場合は、それらは互いに連結して形成された酸無水物(-CO-(O)-CO-)であってもよい。pは0～2の整数であり、qは0～5の整数である。)

- [0033] 上記一般式(1)で表される環式化合物としては、5, 6-ジメチル-5, 6-ジカルボキシビシクロ[2. 2. 1]-2-ヘプテン、5, 6-ジエチル-5, 6-ジカルボキシビシクロ[2. 2. 1]-2-ヘプテン、5, 6-ジメチル-5, 6-ビス(カルボキシメチル)-ビシクロ[2. 2. 1]-2-ヘプテン、5, 6-ジエチル-5, 6-ビス(カルボキシメチル)-ビシクロ[2. 2. 1]-2-ヘプテン、5-メチル-5-カルボキシビシクロ[2. 2. 1]-2-ヘプテン、5-エチル-5-カルボキシビシクロ[2. 2. 1]-2-ヘプテン、5-カルボキシ-5-カルボキシメチル-ビシクロ[2. 2. 1]-2-ヘプテン、5-エチル-5-カルボキシメチル-ビシクロ[2. 2. 1]-2-ヘプテン、8, 9-ジメチル-8, 9-ジカルボキシテトラシクロ[4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}]-3-ドデセン、8, 9-ジエチル-8, 9-ジカルボキシテトラシクロ[4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}]-3-ドデセン、8-メチル-8-カルボキシテトラシクロ[4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}]-3-ドデセン、8-エチル-8-カルボキシテトラシクロ[4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}]-3-ドデセン等が挙げられる。これらは、1種単独あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。
- [0034] 上記一般式(1)で表される環式化合物を用いる場合のその使用量は、全单量体に対して、好ましくは0. 01～15質量%、より好ましくは0. 1～10質量%である。
上記一般式(1)で表される環式化合物を共重合させたエチレン・α-オレフィン共重合体又はエチレン・α-オレフィン・非共役ジエン共重合体は、ランダム共重合体であることが好ましい。また、共重合により得られたランダム共重合体の、GPCによるポリスチレン換算の重量平均分子量Mwは、好ましくは1, 000～3, 000, 000、より好ましくは3, 000～1, 000, 000、更に好ましくは5, 000～700, 000である。
- [0035] 本発明に関わるオレフィン系重合体としては、上記例示したエチレン・α-オレフィン共重合体及びエチレン・α-オレフィン・非共役ジエン共重合体をそれぞれ1種単独あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0036] 上記アクリル系重合体としては、アクリル酸アルキルエステルを含む単量体から得られる重合体等が挙げられる。

上記アクリル酸アルキルエステルとしては、メチルアクリレート、エチルアクリレート、n-プロピルアクリレート、n-ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、n-ペンチルアクリレート、イソアミルアクリレート、n-ヘキシルアクリレート、2-メチルペニチルアクリレート、n-オクチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、n-デシルアクリレート、n-ドデシルアクリレート、n-オクタデシルアクリレート、シアノメチルアクリレート、1-シアノエチルアクリレート、2-シアノエチルアクリレート、1-シアノプロピルアクリレート、2-シアノプロピルアクリレート、3-シアノプロピルアクリレート、4-シアノブチルアクリレート、6-シアノヘキシルアクリレート、2-エチル-6-シアノヘキシルアクリレート、8-シアノオクチルアクリレート等が挙げられる。これらは、1種単独あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0037] 上記アクリル系重合体は、アクリル酸アルキルエステルと他の単量体との共重合体であれば、樹脂でもゴムでもよい。上記アクリル系重合体は、例えば、アクリルゴムである場合には、アクリル酸アルコキシアルキルエステル、エチレン性不飽和化合物、架橋性化合物等を他の単量体として用いることができる。

上記アクリル酸アルコキシアルキルエステルとしては、2-メトキシエチルアクリレート、2-エトキシエチルアクリレート、2-(n-プロポキシ)エチルアクリレート、2-(n-ブトキシ)エチルアクリレート、3-メトキシプロピルアクリレート、3-エトキシプロピルアクリレート、2-(n-プロポキシ)プロピルアクリレート、2-(n-ブトキシ)プロピルアクリレート等が挙げられる。

[0038] 上記エチレン性不飽和化合物としては、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、2-ペンテン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸等のカルボキシル基を有する化合物；1, 1-ジヒドロペルフルオロエチル(メタ)アクリレート、1, 1-ジヒドロペルフルオロプロピル(メタ)アクリレート、1, 1, 5-トリヒドロペルフルオロヘキシル(メタ)アクリレート、1, 1, 2, 2-テトラヒドロペルフルオロプロピル(メタ)アクリレート、1, 1, 7-トリヒドロペルフルオロヘプチル(メタ)アクリレート、1, 1-ジヒドロペルフルオロオクチル(メタ)アクリレート、1, 1-ジヒドロペルフルオロデシル(メタ)アクリレート等の含フッ素アクリル酸エ

ステル;1-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート等のヒドロキシル基を有する化合物;ジエチルアミノエチル(メタ)アクリレート、ジブチルアミノエチル(メタ)アクリレート等の第3級アミノ基を有する单量体;メチルメタクリレート、オクチルメタクリレート等のメタクリル酸エステル;メチルビニルケトン等のアルキルビニルケトン;ビニルエチルエーテル、アリルメチルエーテル等のビニル及びアリルエーテル;スチレン、 α -メチルスチレン、クロロスチレン、ビニルトルエン等のビニル芳香族化合物;アクリロニトリル、メタアクリロニトリル等のシアン化ビニル化合物;エチレン、プロピレン、ブテン、塩化ビニル、塩化ビニリデン、フッ化ビニル、フッ化ビニリデン、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、アルキルフマレート等が挙げられる。

[0039] 上記架橋性化合物としては、ジエン系化合物、ジヒドロジシクロペンタジエニル基を有する(メタ)アクリル酸エステル、エポキシ基を有するエチレン性不飽和化合物、活性ハロゲン含有エチレン性不飽和化合物、カルボキシル基を有するエチレン性不飽和化合物、活性水素基を有するエチレン性不飽和化合物等が挙げられる。

[0040] 上記ウレタン系重合体としては、有機ジイソシアネート、高分子ジオール及び鎖伸長剤を反応させて得られるもの等が挙げられる。

上記有機ジイソシアネートとしては、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、トリレンジイソシアネート、1, 5-ナフチレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、フェニレンジイソシアネート、3, 3'-ジクロロ-4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート等の芳香族ジイソシアネート類;ヘキサメチレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、4, 4'-ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、水添キシリレンジイソシアネート等の脂肪族又は脂環式ジイソシアネート類等が挙げられる。これらの有機ジイソシアネートは、1種単独あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0041] また、上記高分子ジオールとしては、ポリエステルジオール、ポリエーテルジオール、ポリカーボネートジオール、ポリエステルポリカーボネートジオール、ポリエステルポリエーテルジオール等が挙げられる。

これらのうち、ポリエステルジオールとしては、脂肪族ジオールと脂肪族ジカルボン酸又はこれらのエステル形成性誘導体の反応により得られた脂肪族ポリエステルジ

オール、脂肪族ジオールと芳香族ジカルボン酸又はそれらのエステル形成性誘導体の反応により得られた芳香族ポリエステルジオール等が挙げられる。また、ポリエーテルジオールとしては、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール又はそれらのブロック共重合体等が挙げられる。更に、ポリカーボネートジオールとしては、脂肪族ジオールとカーボネート化合物との反応により得られたポリカーボネートジオール、ビスフェノールA等の芳香族ジオールとカーボネート化合物との反応により得られたポリカーボネートジオール等が挙げられる。これらの高分子ジオールは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

- [0042] 上記鎖伸長剤としては、従来から公知の鎖伸長剤を用いることができる。上記鎖伸長剤は、例えば、イソシアネート基と反応し得る活性水素原子を分子中に2個以上有する分子量300以下の低分子化合物、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、1, 4-ブタンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 4-ビス(β-ヒドロキシエトキシ)ベンゼン、1, 4-シクロヘキサンジオール、ビス-(β-ヒドロキシエチル)テレフタレート、キシリレングリコール等のジオール類;ヒドラジン、エチレンジアミン、プロピレンジアミン、キシリレンジアミン、イソホロンジアミン、ピペラジン及びその誘導体、フェニレンジアミン、トリレンジアミン、キシレンジアミン、アジピン酸ジヒドラジン、イソフタル酸ジヒドラジン等のジアミン類、アミノエチルアルコール、アミノプロピルアルコール等のアミノアルコール類等が挙げられる。これらは、1種単独であるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。
- [0043] 上記ポリアミド系重合体としては、ポリアミドからなるハードセグメントと、ポリエステル、ポリエーテル、ポリエステル・ポリエーテル等からなるソフトセグメントとから構成される共重合体等が挙げられる。
- [0044] 上記ポリアミドセグメントとしては、ω-アミノカプロン酸、ω-アミノエナント酸、ω-アミノカプリル酸、ω-アミノペルゴン酸、ω-アミノカプリン酸、11-アミノウンデカン酸、12-アミノドデカン酸等の炭素数が6以上のアミノカルボン酸から誘導されるセグメント;カプロラクタム、ラウリロラクタム等のラクタムから誘導されるセグメント;エチレンジアミン、1, 2-プロピレンジアミン、1, 3-プロピレンジアミン、1, 4-ブタンジアミン、1, 5-ペンタンジアミン、3-メチル-1, 5-ペンタンジアミン、1, 6-ヘキサンジアミン、1, 7

—ヘプタンジアミン、1, 8-オクタンジアミン、2-メチル-1, 8-オクタンジアミン、1, 9-ノナンジアミン、1, 10-デカンジアミン、1, 11-ウンデカンジアミン、1, 12-ドデカンジアミン、シクロヘキサンジアミン等のジアミン成分と、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スペリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、ナフタレン-2, 6-ジカルボン酸、ジフェニル-4, 4'-ジカルボン酸、ジフェノキシエタンジカルボン酸等のジカルボン酸成分とから誘導されるセグメント等が挙げられる。

- [0045] 上記ポリエステルセグメントとしては、 ω -オキシカプロン酸等のヒドロキシカルボン酸から誘導されるセグメント； ϵ -カプロラクトン等のラクトンから誘導されるセグメント；グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スペリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、ナフタレン-2, 6-ジカルボン酸、ジフェニル-4, 4'-ジカルボン酸、ジフェノキシエタンジカルボン酸等のジカルボン酸成分と、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、1, 2-プロピレングリコール、1, 3-プロピレングリコール、1, 4-ブタンジオール、1, 3-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1, 5-ペンタンジオール、3-メチル-1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 7-ヘプタンジオール、1, 8-オクタンジオール、2-メチル-1, 8-オクタンジオール、1, 9-ノナンジオール、1, 10-デカンジオール、シクロヘキサンジメタノール、シクロヘキサンジオール等のジオール成分とから誘導されるセグメント等が挙げられる。
- [0046] また、上記ポリエーテルセグメントとしては、ポリメチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリヘキサメチレングリコール等のセグメント等が挙げられる。
- [0047] 更に、上記ポリエステルポリエーテルセグメントとしては、上記したポリエステルセグメントのジカルボン酸成分と、ポリメチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリヘキサメチレングリコール等のジオール成分とから誘導されるセグメント等が挙げられる。
- [0048] 上記ポリエステル系重合体としては、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステルをハードセグメントとし、ポリテトラメチレングリコールエーテル(PTMG)、PTMEGT(P

TMGとテレフタル酸との縮合物)等のポリエーテルをソフトセグメントとするポリエステル・ポリエーテル型重合体;ポリエステルをハードセグメントとし、ポリカプロラクトン等の脂肪族ポリエステルをソフトセグメントとするポリエステル・ポリエステル型重合体等が挙げられる。

- [0049] 上記フッ素系重合体としては、フッ化ビニリデンを含む单量体から得られる重合体等が挙げられる。他の单量体としては、パーフルオロビニルエーテル、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、クロロトリフルオロエチレン、エチレン、プロピレン、架橋性化合物等が挙げられる。
- [0050] 上記例示した重合体のうち、柔軟性重合体組成物に含有される重合体としては、ジエン系重合体及びオレフィン系重合体が好ましい。これらは、上記のような特定の構造とすることによって、透明性を有する成形体を形成することができ、例えば、透明なガラス、プラスチック等に密着させた場合であっても、透明性の低下を招くことがない。
- 尚、本発明に関わる柔軟性重合体組成物に含有される重合体は、上記例示した重合体に加え、エチレン・酢酸ビニル共重合体、ステレン系重合体、ポリカーボネート、ポリアセタール、エポキシ系重合体等の重合体を任意に組み合わせて用いることもできる。
- [0051] 本発明に関わる柔軟性重合体組成物は、上記例示した重合体のみからなるものであってもよいし、成形体の透明性を損なわない範囲で添加剤等を含有するものであってもよい。添加剤としては、軟化剤、可塑剤、滑剤、架橋剤、架橋助剤、酸化防止剤、老化防止剤、熱安定剤、難燃剤、防菌・防かび剤、耐候剤、紫外線吸収剤、粘着付与剤、造核剤、顔料、染料、有機フィラー、無機フィラー、シランカップリング剤、チタンカップリング剤等が挙げられる。
- [0052] 本発明の有機EL素子用透明封止材は、透明性を有するのみならず、柔軟性をも有する。本発明では、上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体を単独で有機EL素子用透明封止材とする場合と、上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体の少なくとも一部を架橋させて有機EL素子用透明封止材とする場合がある。後者の場合には架橋構造を有することで、耐熱性がより向上する。

[0053] 上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体の少なくとも一部を架橋させて本発明の有機EL素子用透明封止材とする場合には、架橋剤が用いられる。例えば、有機過酸化物、硫黄、硫黄含有化合物等が挙げられる。

上記有機過酸化物としては、t-ブチルハイドロパーオキサイド、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルハイドロパーオキサイド、p-メンタンハイドロパーオキサイド、クメンハイドロパーオキサイド、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキサイド、2, 5-ジメチルヘキサン-2, 5-ジハイドロパーオキサイド、1, 1-ジ-t-ブチルパーオキシ-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、ジ-t-ブチルパーオキサイド、t-ブチルクミルパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、1, 1-ビス(t-ブチルパーオキシ)シクロドデカン、2, 2-ビス(t-ブチルパーオキシ)オクタン、1, 1-ジ-t-ブチルパーオキシシクロヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ-(t-ブチルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ-(t-ブチルパーオキシ)ヘキシン、1, 3ビス(t-ブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ-(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、1, 1-ビス(t-ブチルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、n-ブチル-4, 4-ビス(t-ブチルパーオキシ)バレレート、ベイゾイルパーオキサイド、m-トルイルパーオキサイド、p-クロロベンゾイルパーオキサイド、2, 4-ジクロロベンゾイルパーオキサイド、t-ブチルパーオキシイソブチレート、t-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ブチルパーオキシベンゾエート、t-ブチルパーオキシイソプロピルカーボナート、t-ブチルパーオキシアリルカーボナート等が挙げられる。これらは、1種単独あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0054] また、上記一般式(1)で表される環式化合物を用いて得られた共重合体に化学的架橋構造又はそれと類似した拘束点を有する構造を形成させる場合には、金属イオン、金属化合物等を用いることができる。この金属イオンは、以下に例示する元素のイオン及びこの元素を含む金属化合物のイオンも意味する。この金属としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、アルミニウム、マグネシウム、カルシウム、バリウム、セシウム、ストロンチウム、ルビジウム、チタン、亜鉛、銅、鉄、錫、鉛、ジルコニウム等周期表第一-VIII族の元素等が挙げられる。これらの元素を含むイオンは、上記で得られたランダム共重合体中の官能基に対するイオン結合あるいは静電的な結合により共重合

体どうしの間に架橋構造を形成することもできる。尚、上記金属化合物のイオンとするための物質としては、各金属の酸化物、水酸化物、塩、錯体(金属カルボキシレート、金属アセチルアセトナート等)、金属元素を含む有機化合物(炭素数が1ー8から選ばれ、且つ、金属元素を含むアルコキシド等)等が挙げられる。

- [0055] 上記イオンとするための物質の使用量は、上記一般式(1)で表される環式化合物を用いて得られた共重合体を構成する環式化合物より形成された単位の1当量に対し、好ましくは0.01ー50当量、より好ましくは0.1ー10当量、特に好ましくは0.2ー5当量である。上記イオンとするための物質の使用量が少なすぎると、得られる成形体は、架橋密度又は拘束点密度が低く、機械的強度及び耐熱性に劣る傾向がある。一方、使用量が多くすぎると、得られる成形体は、架橋密度又は拘束点密度が高くなり、硬度が高すぎて脆いものとなることがある。
- [0056] 更に、上記一般式(1)で表される環式化合物を用いて得られた共重合体に対する、上記イオンとするための物質の混和性及び得られる成形体の耐熱性を向上させるために、上記イオンとするための物質以外に、活性剤としてカルボン酸等の有機酸の金属塩を添加してもよい。このカルボン酸の金属塩としては、炭素数3ー23の1価のカルボン酸の金属塩を用いることが好ましい。
- また、活性剤として用いられる金属塩における金属元素としては、上記イオンとするための物質を構成する金属元素から選択すればよいが、上記イオンとするための物質を構成する金属元素と同種の元素を含む金属塩を用いることが好ましい。
- [0057] 本発明においては、より柔軟性が向上した成形体するために、上記柔軟性重合体組成物に、液状物質を含むことが好ましい。この液状物質としては、ダーカスポットの発生を抑制するために、40°Cにおける動粘度が好ましくは800mm²/s(1cm²/s = 1St)以下、より好ましくは600mm²/s以下、更に好ましくは0.1ー500mm²/sであるものであれば、上記添加剤成分等をそのまま用いることができる。即ち、上記液状物質としては、動粘度が上記条件を満たす物質であれば、軟化剤、可塑剤、滑剤、液状重合体等を好適に用いることができる。
- [0058] 軟化剤としては、パラフィン系油等の天然又は合成の石油系軟化剤、エチレン・α-オレフィン系オリゴマー、ギルソナイト等の鉱物油系軟化剤、オレイン酸、リシノール

酸等の脂肪酸等が挙げられる。可塑剤としては、フタル酸誘導体、イソフタル酸誘導体、テトラヒドロフタル酸誘導体、アジピン酸誘導体、セバシン酸誘導体、フマル酸誘導体、クエン酸誘導体、アゼライン酸誘導体、リン酸誘導体、マレイン酸誘導体等の各種脂肪酸の誘導体等が挙げられる。滑剤としては、パラフィン系滑剤、炭化水素系滑剤、金属セッケン等が挙げられる。また、液状重合体としては、液状ポリブタジエン、液状スチレン・ブタジエンゴム等の液状ゴム、ポリイソブチレン、シリコーンオイル等が挙げられる。上記例示した液状物質は、1種単独で、あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

- [0059] 上記液状物質の使用量は、上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体の全量を100質量部とした場合、好ましくは50～5000質量部、より好ましくは50～4000質量部、更に好ましくは50～3000質量部、特に好ましくは70～2000質量部である。上記液状物質の配合量が50質量部未満であると、所望の弾性率を有する成形体が得られない場合がある。一方、上記液状材物質の配合量が5000質量部を超えると、成形体から液状物質がにじみ出ることがあり、透明性を維持することが困難になる場合がある。
- [0060] 上記柔軟性重合体組成物を用い、射出成形、押出成形、中空成形、圧縮成型、真空成形、積層成形、カレンダー成形、キャスト成形、コーティング成形、ロール成形、Tダイコーティング、Tダイ押出成形、注入成形等の公知の方法によって、所望の形状を有する成形体を得ることができる。得られる成形体は、透明性に優れ、厚さ0.5mmとした場合、そのヘイズは、好ましくは5%未満、より好ましくは4.5%以下、更に好ましくは4%以下である。また、得られる成形体の全光線透過率は、好ましくは90%以上、より好ましくは91%以上、更に好ましくは92%以上である。上記全光線透過率は、広い温度範囲で得ることができ、例えば、-100～110℃、好ましくは-50～100℃で得ることができる。尚、ヘイズ及び全光線透過率の測定方法は、後述する。
- [0061] また、得られる成形体は、優れた強度及び柔軟性を有する。得られる成形体の30℃、1Hzの条件下、動的粘弹性測定により得られる剪断貯蔵弾性率(G')は、好ましくは $1 \times 10^{10} \text{ dyn/cm}^2$ 以下、より好ましくは $1 \times 10^8 \text{ dyn/cm}^2$ 以下、更に好ましくは $1 \times 10^6 \text{ dyn/cm}^2$ 以下であり、通常、 1 dyn/cm^2 以上である。尚、剪断貯蔵弾性率

の測定方法は、後述する。

また、得られる成形体は、耐熱性にも優れている。得られる成形体は、好ましくは−80～110℃、より好ましくは−50～100℃において、柔軟性、透明性及び形状保持性を併せ持つ。

- [0062] 本発明の有機EL素子用透明封止材は、上記のような性質を有するため、少なくとも発光素子全体を封止し、更に発光素子を取り巻く空間部を埋めるのに好適である。本発明の有機EL素子用透明封止材の形状は限定されるものではなく、空間部の形状に合わせたものとすることができます。また、薄肉部を有する薄肉体とすることもでき、板状体、凹状体等とすることができます。その場合の最薄部の厚さは、好ましくは2000 μm以下、より好ましくは0.1～2000 μm、更に好ましくは0.1～1000 μm、特に好ましくは0.1～500 μm、更に好ましくは0.1～100 μmとすることができます。
- [0063] 本発明の有機EL素子用透明封止材は、例えば、図1に示すELディスプレイパネル1の所定の位置に配設することができる。即ち、図1に示す態様は、有機EL素子用透明封止材2が、図3に示す発光素子3(図1における構成部材31～34)の発光面(図1における上方)及び封止部材4の間の空間部を埋めるように、その両方に密着させて配設された説明図である。本発明の有機EL素子用透明封止材は、上記のように、柔軟性に優れるので、発光素子を十分に封止するように密着させることができ、このことより、画像の視認性が向上する。
- [0064] また、本発明の有機EL素子用透明封止材は、図2に示す形態で用いることもできる。即ち、発光素子(図1における構成部材31～34)の発光面(図2における上方)、及び、封止部材4(図2における形状のものは、「封止缶」といわれることもある。)の間の空間部を埋めるように配設することもできる。
- 本発明の有機EL素子用透明封止材の使用方法は、図1及び図2のような態様に限定されないが、どのような配設方法であっても、上記説明した性質を長時間に渡つて維持し続けることができる。即ち、本有機EL素子用透明封止材は、使用時間とともに劣化することなく、更に、発光素子を損傷させたり、ダーススポットを発生させたりすることも少ない。
- [0065] 上記封止部材(図1及び図2における番号4)は、ディスプレイパネルの表示内容の

視認性を大きく阻害することがない性質を有する材料であればよい。上記封止部材を構成する材料としては、例えば、ガラス、樹脂等を用いることができる。ガラスとしては、ホウケイ酸ガラス、アルミノケイ酸ガラス、アルミノホウケイ酸ガラス、シリカガラス、低アルカリガラス、ソーダ石灰ガラス等が挙げられる。また、樹脂としては、ポリカーボネート系樹脂、ポリアセタール系樹脂、1, 2-ポリブタジエン樹脂、好ましくは3質量%以上の酢酸ビニル単位を含有するエチレン・酢酸ビニル共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン等のオレフィン系樹脂、ステレン系樹脂、アクリル系樹脂、ビニルエステル系樹脂、飽和ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリフッ化ビニリデン等のフッ素樹脂、ウレタン系樹脂、エポキシ系樹脂、不飽和ポリエステル系樹脂、シリコーン系樹脂等が挙げられる。

上記封止部材の形状は、図1のように板状であってもよいし、図2のように発光部材等を覆う蓋型形状であってもよい。

実施例

[0066] 以下、本発明について、実施例を挙げて具体的に説明する。尚、本発明は、これらの実施例に何ら制約されるものではない。また、実施例中の「%」及び「部」は、特に断らない限り質量基準である。

1. 柔軟性重合体組成物の調製

以下に示す方法で得た重合体及び液状物質を用いて表1に記載の割合で混合し、柔軟性重合体組成物(i)ー(vii)を調製した。

1-1. 重合体

(1) ブタジエンプロック重合体の水素化物(A1)

窒素置換された内容積50リットルの反応容器に、シクロヘキサン25kg、テトラヒドロフラン1g、1, 3-ブタジエン1500g及びn-ブチルリチウム3. 9gを投入し、70°Cで断熱重合を行った。反応完結後、反応溶液の温度を40°Cとし、テトラヒドロフラン100g及び1, 3-ブタジエン3500gを添加して更に断熱重合した。30分後、メチルジクロロシラン2. 7gを添加し、15分反応を行い、反応を完結させた。

次に、水素ガスを0. 4MPa-Gの圧力で供給し、反応溶液を攪拌しながら、リビングアニオンとして生きているポリマー末端リチウムと20分間反応させ、水素化リチウムと

した。その後、反応溶液を90°Cとしてテトラクロロシラン0.8gを更に添加し、約20分間攪拌した。次いで、チタノセン化合物を主体とした水素添加触媒を反応溶液に加え、水素ガスの供給圧を0.8MPaとして2時間水素添加反応を行い、水素の吸収が終了した時点で、反応溶液を常温、常圧に戻して反応容器より抜き出した。その後、反応溶液を水中に攪拌投入して溶媒を水蒸気蒸留により除去することによって、水素添加ブロック重合体A1を得た。得られた水素添加ブロック重合体A1の水素添加率は99%、重量平均分子量は34万、水素添加前ポリマーの1段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は15%、水素添加前ポリマーの2段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は49%であった。

[0067] (2)ブタジエンブロック重合体の水素化物(A2)

窒素置換された内容積50リットルの反応容器に、シクロヘキサン25kg、テトラヒドロフラン1g、1,3-ブタジエン1500g及びn-ブチルリチウム4.1gを投入し、70°Cで断熱重合を行った。反応完結後、反応溶液の温度を35°Cとし、テトラヒドロフラン27g及び1,3-ブタジエン3500gを添加して更に断熱重合した。30分後、メチルジクロロシラン2.9gを添加し、15分反応を行い、反応を完結させた。

次に、水素ガスを0.4MPa-Gの圧力で供給し、反応溶液を攪拌しながら、リビングアニオンとして生きているポリマー末端リチウムと20分間反応させ、水素化リチウムとした。その後、反応溶液を90°Cとしてテトラクロロシラン0.9gを更に添加し、約20分間攪拌した。次いで、チタノセン化合物を主体とした水素添加触媒を反応溶液に加え、水素ガスの供給圧を0.8MPaとして2時間水素添加反応を行い、水素の吸収が終了した時点で、反応溶液を常温、常圧に戻して反応容器より抜き出した。その後、反応溶液を水中に攪拌投入して溶媒を水蒸気蒸留により除去することによって、水素添加ブロック重合体A2を得た。得られた水素添加ブロック重合体A2の水素添加率は98%、重量平均分子量は29万、水素添加前ポリマーの1段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は14%、水素添加前ポリマーの2段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は35%であった。

[0068] (3)ブタジエンブロック重合体の水素化物(A3)

窒素置換された内容積50リットルの反応容器に、シクロヘキサン25kg、テトラヒドロ

フラン1g、1, 3-ブタジエン1500g及びn-ブチルリチウム4. 1gを投入し、70°Cで断熱重合を行った。反応完結後、反応溶液の温度を5°Cとし、テトラヒドロフラン350g及び1, 3-ブタジエン3500gを添加して更に断熱重合した。30分後、メチルジクロロシラン2. 9gを添加し、15分反応を行い、反応を完結させた。

次に、水素ガスを0. 4MPa-Gの圧力で供給し、反応溶液を搅拌しながら、リビングアニオンとして生きているポリマー末端リチウムと20分間反応させ、水素化リチウムとした。その後、反応溶液を90°Cとしてテトラクロロシラン0. 9gを更に添加し、約20分間搅拌した。次いで、チタノセン化合物を主体とした水素添加触媒を反応溶液に加え、水素ガスの供給圧を0. 8MPaとして2時間水素添加反応を行い、水素の吸收が終了した時点で、反応溶液を常温、常圧に戻して反応容器より抜き出した。その後、反応溶液を水中に搅拌投入して溶媒を水蒸気蒸留により除去することによって、水素添加ブロック重合体A3を得た。得られた水素添加ブロック重合体A3の水素添加率は99%、重量平均分子量は30万、水素添加前ポリマーの1段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は15%、水素添加前ポリマーの2段目のブタジエン重合体ブロックのビニル結合含量は78%であった。

[0069] (4) ジエン系重合体の水素化物(A4)

窒素置換された内容積50リットルの反応容器に、シクロヘキサン25kg、テトラヒドロフラン1g、ステレン200g及びn-ブチルリチウム4. 1gを投入し、50°Cで断熱重合を行った。反応完結後、反応溶液の温度を10°Cとし、テトラヒドロフラン750g、ステレン200g及び1, 3-ブタジエン4500gを添加して更に断熱重合した。反応完結後、更にステレンを200g添加して断熱重合を行った。

次に、水素ガスを0. 4MPa-Gの圧力で供給し、反応溶液を搅拌しながら、リビングアニオンとして生きているポリマー末端リチウムと20分間反応させ、水素化リチウムとした。その後、反応溶液を90°Cとしてチタノセン化合物を主体とした水素添加触媒を反応溶液に加え、水素ガスの供給圧を0. 8MPaとして2時間水素添加反応を行い、水素の吸收が終了した時点で、反応溶液を常温、常圧に戻して反応容器より抜き出した。その後、反応溶液を水中に搅拌投入して溶媒を水蒸気蒸留により除去することによって、水素添加ブロック重合体A4を得た。得られた水素添加ブロック重合体A4の

水素添加率は99%、重量平均分子量は30万、水素添加前ポリマーの2段目の重合体ブロックのビニル結合含量は80%であった。

[0070] (5) オレフィン系重合体(A5)

エチレンに由来する構造単位を75. 1モル%、プロピレンに由来する構造単位を22. 8モル%、5-エチリデン-2-ノルボルネンに由来する構造単位を1. 8モル%、及び8-メチル-8-カルボキシテトラシクロ[4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}]—3-ドデセンに由来する構造単位を0. 3モル%含み、重量平均分子量(Mw)が $16. 0 \times 10^4$ である官能基含有オレフィン系共重合体100部をトルエン1000部に溶解した後、官能基含有オレフィン系共重合体中の官能基1当量に対して、1当量のジルコニウム(IV)ブтокシド(85%の1-ブタノール溶液(和光純薬工業社製)を使用)を加え、80°Cで1時間攪拌した後、トルエンを乾燥除去して重合体A5を得た。

[0071] 1-2. 液状物質

B1; 40°Cにおける動粘度が $30. 85 \text{ mm}^2/\text{s}$ である鉱物油系軟化剤(出光興産社製、商品名「PW-32」)である。

B2; 40°Cにおける動粘度が $95. 54 \text{ mm}^2/\text{s}$ である鉱物油系軟化剤(出光興産社製、商品名「PW-90」)である。

B3; 40°Cにおける動粘度が $381. 6 \text{ mm}^2/\text{s}$ である鉱物油系軟化剤(出光興産社製、商品名「PW-380」)である。

[0072] また、比較例に用いる柔軟性重合体組成物(viii)として、熱可塑性ポリウレタン(クラレ社製、商品名「クラミロンU1190」)A6を用いた。

[0073] [表1]

表 1

		柔軟性重合体組成物									
		(i)	(ii)	(iii)	(iv)	(v)	(vi)	(vii)	(viii)	(ix)	(x)
重合体(部)	A1	100	100	100			100				
	A2				100						
	A3					100					
	A4							100	100		
	A5									100	
	A6										100
液状物質(部)	B1	1600	800	400							
	B2				800	800			100		
	B3						800				

[0074] 2. 有機EL素子用透明封止材の作製及びその評価

実施例1

上記柔軟性重合体組成物(i)を用い、コーティングにより板状薄肉体を得て、これを有機EL素子用透明封止材とした。この有機EL素子用透明封止材を以下 の方法で評価した。その結果を表2に示す。

(1)全光線透過率及びヘイズ

厚さ0.7mmの溶融成形アルミニケイ酸薄板ガラス(コーニング社製、商品名「Corning 1737」)2枚の間に、厚さ0.5mmの薄肉体をはさみ、25°Cにおける全光線透過率(%)及びヘイズ(%)を、全光線透過率ヘイズ測定装置(BYK-Gardner社製、商品名「Haze-gard plus4725」)により測定した。尚、透明度は、ヘイズが5%未満であり透明度に優れている場合を「○」、5%以上であり透明度に劣る場合を「×」とした。

(2)画像の視認性

厚さ500μmの有機EL素子用透明封止材に印刷物を密着させ、印刷物の視認性を目視にて判定した。良好な場合を「○」、不良な場合を「×」とした。

(3)粘弾性

剪断貯蔵弾性率(G')及びtan δを、動的粘弾性測定装置(レオロジー社製「MR-500」)により、温度30°C、1Hzの条件で測定した。尚、G'は、70°C、1Hzの条件で

も測定した。この剪断貯蔵弾性率が200万を超える場合には柔軟性に劣り、200万以下であれば柔軟性に優れると評価した。

(4) 封止性

絶縁性透明ガラスからなる基板31の上に陽極層32を有し、その上面に発光層33、更にその上面の陰極層34を有する発光素子3を作製した(図3参照)。次いで、上記柔軟性重合体組成物(i)から作製した厚さ $500\text{ }\mu\text{m}$ の有機EL素子用透明封止材2を、上記発光素子3の上記陰極層34の上面に静置した。その後、封止部材4として絶縁性透明ガラスを上記有機EL素子用透明封止材2の上面に設置して、ELディスプレイパネルのモデルを作製した(図1参照)。このとき、柔軟性重合体組成物が柔軟性に優れ、ELディスプレイパネル内部に生じる空間部を空隙なく密着させて生めることができると封止性に優れるとして「○」、柔軟性重合体組成物が柔軟性に劣り、ELディスプレイパネル内部に生じる空隙なく密着させることができない場合を封止性に劣るとして「×」とした。

(5) ダークスポット

次に、上記モデルを、80°Cで100時間加熱し、その後、室温(25°C)まで冷却した後、発光素子を起動させ、ダークスポット(非発光箇所)を観察した。ダークスポットの面積が全体に対して5%未満の場合をダークスポットの発生抑制に優れるとして「○」、5%以上の場合をダークスポットの発生抑制に劣るとして「×」とした。

[0075] 実施例2～6、8

上記柔軟性重合体組成物(ii)～(vi)、(viii)を用い、実施例1と同様にして有機EL素子用透明封止材を得た。各有機EL素子用透明封止材を実施例1と同様に評価した。その結果を表2に併記する。

[0076] 実施例7、9

上記柔軟性重合体組成物(vii)、(ix)を用い、200°Cで加熱プレスし、厚さ $500\text{ }\mu\text{m}$ の有機EL素子用透明封止材を得た。この有機EL素子用透明封止材を、実施例1と同様に評価した。その結果を表2に併記する。

[0077] 比較例1

上記柔軟性重合体組成物(x)(重合体A6)を用い、160°Cで加熱プレスし、厚さ5

00 μmの有機EL素子用透明封止材を得た以外は、実施例7と同様に評価した。その結果を表2に併記する。

[0078] [表2]

	実施例								比較例		
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	1	
ヘイズ(%)	2.4	3.2	4.5	2.5	2.6	2.6	2.1	2	3	29.9	
全光線透過率(%)	94	94	93	94	94	94	94	94	93	93	
透明度	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	
視認性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	
剪断貯藏弾性率G' (dyn/cm ²)	30°C 70°C	1,900 100	5,800 1,900	27,300 11,700	10,700 3,900	5,500 1,800	6,100 2,300	332,000 261,000	5,800 5,100	1,240,000 429,000	4,690,000 3,700
封止性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	
ダークスポット	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	

表 2

[0079] 3. 評価結果について

表2より、比較例1は、透明性に劣るため、画像の視認性が不良であった。また、ダークスポットの面積も大きくなつた。一方、実施例1～9はいずれも透明性、柔軟性に優れ、ELディスプレイパネル内部に生じる空間部を空隙なく密着させて埋めることができた。また、実施例1～9はいずれも画像の視認性が高く、ダークスポットの発生も十分に抑制することができた。

産業上の利用可能性

[0080] 本発明の有機EL素子用透明封止材は、視認性の高い有機ELディスプレイパネルに好適に用いることができる。本発明の有機EL素子用透明封止材は、携帯電話、携帯情報端末、デスクトップ型コンピュータ、ノート型コンピュータ、テレビジョン、車載用情報機器、時計等に用いることができる。

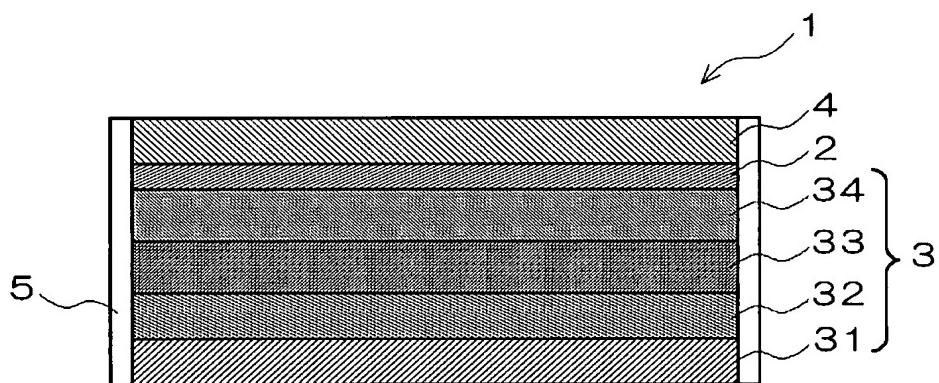
請求の範囲

- [1] 基板と、陽極層と、発光層と、陰極層と、を順次含む発光素子及び該発光素子の発光面側に配設される封止部材を備えるエレクトロルミネッセンスディスプレイパネルに用いられる有機EL素子用透明封止材であって、柔軟性重合体組成物から形成され、且つ、上記発光素子の発光面と上記封止部材との間に配設されることを特徴とする有機EL素子用透明封止材。
- [2] 本有機EL素子用透明封止材を厚さ0.5mmとした場合、その全光線透過率は90%以上である請求項1記載の有機EL素子用透明封止材。
- [3] 上記柔軟性重合体組成物は、エラストマー組成物である請求項1記載の有機EL素子用透明封止材。
- [4] 上記柔軟性重合体組成物は、ジエン系重合体、オレフィン系重合体、アクリル系重合体、ウレタン系重合体、ポリアミド系重合体、ポリエステル系重合体、塩化ビニル系重合体、フッ素系重合体及びシリコーン系重合体から選ばれる少なくとも1種の重合体を含む請求項1記載の有機EL素子用透明封止材。
- [5] 上記ジエン系重合体は、ステレン・ブタジエン共重合体及びその水素化物、ステレン・イソブレン共重合体及びその水素化物、ブタジエンブロック共重合体及びその水素化物、ステレン・ブタジエン・ステレンブロック共重合体及びその水素化物、並びに、ステレン・イソブレン・ステレンブロック共重合体及びその水素化物から選ばれる少なくとも1種である請求項4記載の有機EL素子用透明封止材。
- [6] 上記ジエン系重合体は、ビニル結合含量が25%未満であるブタジエン重合体ブロック(I)と、共役ジエン単位(a1)及び他の単量体単位(a2)の質量割合[(a1)/(a2)]が(100~50)/(0~50)であり、ビニル結合含量が25~95%である重合体ブロック(II)とを、それぞれ分子中に少なくとも1つ有する共役ジエン系ブロック重合体が水素添加されてなる共役ジエン系ブロック重合体の水素化物である請求項4記載の有機EL素子用透明封止材。
- [7] 上記ジエン系重合体は、共役ジエン単位(b1)及び芳香族ビニル化合物(b2)の質量割合[(b1)/(b2)]が(99~50)/(1~50)であり、ビニル結合含量が65~95%である重合体ブロックを分子中に少なくとも1つ有するジエン系重合体が水素添加

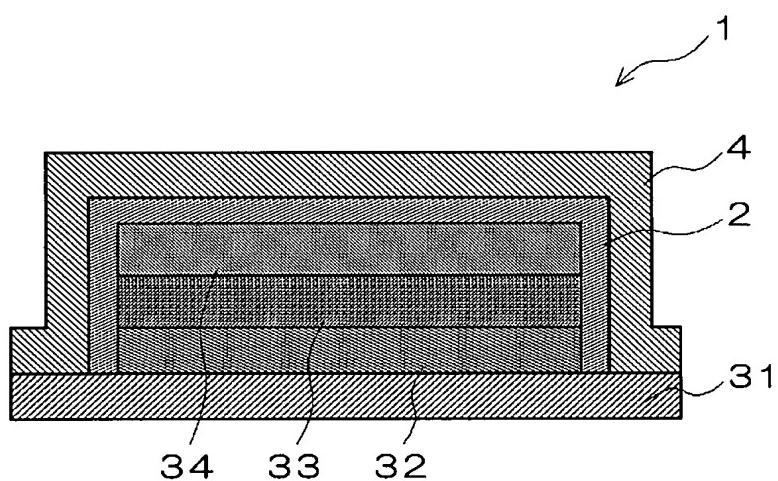
されてなるジエン系重合体の水素化物である請求項4記載の有機EL素子用透明封止材。

- [8] 上記オレフィン系重合体は、エチレン・ α -オレフィン共重合体及びエチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体から選ばれる少なくとも1種である請求項4記載の有機EL素子用透明封止材。
- [9] 上記エチレン・ α -オレフィン共重合体及び上記エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体は、カルボキシル基、ヒドロキシル基、エポキシ基、アミノ基、アルコキシリル基、スルホン酸基及びニトリル基から選ばれる官能基を有する請求項8記載の有機EL素子用透明封止材。
- [10] 更に金属イオン及び／又は金属化合物を含む請求項8記載の有機EL素子用透明封止材。
- [11] 上記柔軟性重合体組成物は、液状物質を含む請求項1記載の有機EL素子用透明封止材。
- [12] 上記液状物質の40°Cにおける動粘度が800mm²/s以下である請求項11記載の有機EL素子用透明封止材。
- [13] 上記液状物質の含有量は、上記柔軟性重合体組成物に含有される重合体の合計100質量部に対して、50~5000質量部である請求項11記載の有機EL素子用透明封止材。
- [14] 本有機EL素子用透明封止材は、最薄部の厚さが0.1~1000μmの薄肉体である請求項1記載の有機EL素子用透明封止材。

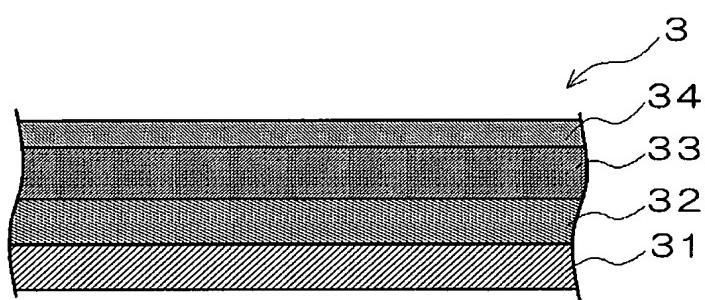
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014519

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H05B33/04, H05B33/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ H05B33/00-33/28, C08C19/00-19/44; C08F6/00-246/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2002-505791 A (International Business Machines Corp.), 19 February, 2002 (19.02.02), Claim 1; page 8, lines 6 to 7; page 10, lines 14 to 16; page 11, lines 19 to 26; page 12, lines 4 to 16; Fig. 1 (Family: none)	1-4, 14
Y	JP 7-169567 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 04 July, 1995 (04.07.95), Par. Nos. [0003], [0051] to [0077] (Family: none)	5-13
		5

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

- * Special categories of cited documents:
- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search 27 January, 2005 (27.01.05)	Date of mailing of the international search report 15 February, 2005 (15.02.05)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP2004/014519
--

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-110342 A (Kabushiki Kaisha Riboru), 12 April, 2002 (12.04.02), Par. Nos. [0006] to [0007], [0014] to [0016]; Fig. 1 (Family: none)	5,11-13
Y	JP 3-128957 A (Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.), 31 May, 1991 (31.05.91), Claim 1; page 2, column 4, lines 10 to 13 & EP 409580 A	6-7
Y	JP 2003-155385 A (JSR Corp.), 27 May, 2003 (27.05.03), Claim 5; Par. Nos. [0013], [0034] & US 2003/0100683 A1	6-7
Y	JP 4-301391 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 23 October, 1992 (23.10.92), Claim 1; Par. Nos. [0001] to [0008] (Family: none)	8-10
Y	JP 2003-68446 A (JSR Corp.), 07 March, 2003 (07.03.03), Par. No. [0030] (Family: none)	10
Y	JP 2003-89165 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 25 March, 2003 (25.03.03), Par. No. [0025] (Family: none)	10
Y	JP 2003-31357 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 31 January, 2003 (31.01.03), Par. Nos. [0032] to [0033] (Family: none)	11-13
P,A	JP 2003-317933 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 07 November, 2003 (07.11.03), Full text; all drawings (Family: none)	1-14

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））
Int. Cl. 7 H05B33/04, H05B33/14

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））
Int. Cl. 7 H05B33/00-33/28
C08C19/00-19/44; C08F6/00-246/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2004年
日本国実用新案登録公報 1996-2004年
日本国登録実用新案公報 1994-2004年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 2002-505791 A (インターナショナル・ビジネス・マシーンズ・コーポレーション)	1-4, 14
Y	2002. 2. 19, 請求項1, 第8頁, 第6-7行, 第10, 頁第14-16行, 第11頁, 第19-26行, 第12, 頁第4-16行, 図1 (ファミリーなし)	5-13
Y	J P 7-169567 A (出光興産株式会社) 1995. 7. 4, 段落【0003】，【0051】-【0077】 (ファミリーなし)	5

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 27. 01. 2005	国際調査報告の発送日 15. 2. 2005
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 里村利光 電話番号 03-3581-1101 内線 3271 <input type="checkbox"/> 2V <input type="checkbox"/> 3491

C(続き) .	関連すると認められる文献	関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
Y	JP 2002-110342 A (株式会社リボール) 2002. 4. 12, 段落【0006】-【0007】, 【0014】-【0016】 , 図1 (ファミリーなし)	5, 11-13
Y	JP 3-128957 A (日本合成ゴム株式会社) 1991. 5. 31, 請求項1, 第2頁, 第4欄, 第10-13行 & EP 409580 A	6-7
Y	JP 2003-155385 A (ジェイエスアール株式会社) 2003. 5. 27, 請求項5, 段落【0013】 , 【0034】 & US 2003/0100683 A1	6-7
Y	JP 4-301391 A (住友化学工業株式会社) 1992. 10. 23, 請求項1, 段落【0001】-【0008】 (ファミリーなし)	8-10
Y	JP 2003-68446 A (ジェイエスアール株式会社) 2003. 3. 7, 段落【0030】 (ファミリーなし)	10
Y	JP 2003-89165 A (大日本印刷株式会社) 2003. 3. 25, 段落【0025】 (ファミリーなし)	10
Y	JP 2003-31357 A (凸版印刷株式会社) 2003. 1. 31, 段落【0032】-【0033】 (ファミリーなし)	11-13
P, A	JP 2003-317933 A (旭硝子株式会社) 2003. 11. 7, 全文全図 (ファミリーなし)	1-14